

リエントラントスピングラスに於けるスピン相関の研究

著者	鈴木 淳市
号	1200
発行年	1991
URL	http://hdl.handle.net/10097/25150

氏名・（本籍）	すずき じゅん いち 鈴 木 淳 市
学位の種類	理 学 博 士
学位記番号	理博第 1 2 0 0 号
学位授与年月日	平成 3 年 3 月 28 日
学位授与の要件	学位規則第 5 条第 1 項該当
研究科専攻	東北大学大学院理学研究科 (博士課程) 物理学第二専攻
学位論文題目	リエントラントスピングラスに於けるスピン相関の研究
論文審査委員	(主査) 教 授 中 川 康 昭 教 授 遠 藤 康 夫 助 教 授 神 木 正 史

論 文 目 次

序 論

第 1 章 スピングラスの概要

- 1.1 Edwards-Anderson 模型
- 1.2 Sherrington-Kirkpatrick 模型と Parisi 解 (Ising)
- 1.3 Sherrington-Kirkpatrick 模型 (Non-Ising)
- 1.4 $\pm J$ 模型
- 1.5 リエントラント相と混合相
- 1.6 スピングラスの実験

第 2 章 中性子小角散乱

- 2.1 中性子小角散乱の理論
- 2.2 密度揺らぎによる中性子小角散乱
- 2.3 中性子小角散乱と Porod 則

第 3 章 パルス冷中性子小角散乱装置の改良

3.1 パルス冷中性子小角散乱装置の概要

3.2 データ集積及び解析系の改良

3.3 周辺機器の開発と環境整備

第4章 スピングラス FeAl 合金

4.1 なぜ FeAl 合金を選んだのか？

4.2 スピングラス FeAl 合金の概要

4.3 試料の作成

4.4 磁化測定

第5章 スピングラス FeAl 合金の中性子小角散乱

5.1 無磁場中に於けるスピン相関の温度依存性

5.2 スピン相関の磁場依存性

5.3 スピン相関の組成依存性

第6章 スピングラス FeAl 合金の透過中性子偏極率解析

6.1 透過中性子偏極率解析の原理

6.2 リエントラント相の内部磁場分布

第7章 総 括

参考文献

謝辞

論文内容要旨

スピングラスの研究は古くから行われているが、いまだ十分な理解に至らない問題の1つとしてリエントラント転移がある。現在最も確かなものとされている Heisenberg モデルによるスピングラスの平均場理論では、リエントラント転移は自発磁化に垂直なスピン構成成分の凍結によるものであり、リエントラント相はこのような有限の自発磁化を持ち、さらにスピン横成分のランダムな凍結を伴う混合相であると予想されている。しかしながら、これが唯一の解釈であるのかどうか明らかにされていないというのが研究の現状である。実際、Campbell らによる $\text{Au}_{0.81}\text{Fe}_{0.19}$ 合金に関する Mossbauer 効果の実験では、局所内部磁場を測定し、ある有限温度以下でこの値が急増するような結果が得られている。そして、これは高温で熱的に揺らいでいたスピン横成分が低温で凍結した分の増大によると解釈され平均場理論を支持するものとなっている (Campbell et al., 1983)。一方、Mitsuda による $\text{Fe}_{0.7}\text{Al}_{0.3}$ 合金に関する透過中性子偏極率解析の実験では、やはり系の局所内部磁場を観測しているが、低温でこの値が増大するような振舞いは得られず (Mitsuda, 1986)、平均場理論の予想とは異なる結果を与えた。筆者が特に関心を抱いたのは、このリエントラント転移点以下のスピン状態を長距離に渡るスピン相関を観測量とするパルス冷中性子小角散乱を中心に、局所内部磁場を観測量とする透過中性子偏極率解析、そして磁化測定により明らかにすることである。このことは低温でなぜスピングラス性が出現するのかという機構とともに、低温相は如何に安定に存在するのかというスピングラスの本質を理解する上で非常に興味深い問題であると思われた。筆者はまず研究を進める前に、より効率よく中性子小角散乱実験ができるように装置の改良を進めてきた。この内容はデータ集積及び解析系、試料周辺の広範囲に及ぶものであり大部分の精力をここに尽くした。その結果本研究をスムーズに行うことができた。

実験はリエントラント相のスピン状態を詳細に調べることを目的として、リエントラント転移点が他のスピングラス物質と比較して高温である $\text{Fe}_{1-x}\text{Al}_x$ 合金 ($x=0.247, 0.285, 0.318, 0.324, 0.337$) を研究対象とした。試料は b, c, c 鉄の体心がランダムに Fe と Al 原子で置換された FeAl 型 (CsCl 型) の構造を持つように熱処理が施された単結晶 (ただし、 $x=0.337$ の試料は多結晶) である。さて、これまで中性子小角散乱の測定は $x\sim 0.3$ 組成に関してのみなされていたが、それらの散乱強度の温度依存性は Child と Motoya らの結果 (Child, 1981, Motoya, Shapiro and Muraoka, 1983) と Cable らの結果 (Cable, David and Parra, 1977) で異なる振舞いを与えていた。筆者はこれらの違いは測定した Q 領域の違いによるものであるとの予想のもとで、広い Q 領域を同時に測定できるという特徴を持つパルス冷中性子小角散乱装置 (高エネルギー物理学研究所ブースター利用施設) を用いてこの予想を確かめること、その上でさらに詳しい実験、解析を試みた。その結果以下のことが明らかになった。

まず、リエントラント転移をはっきりと示す $x=0.285$ の試料に関してパルス冷中性子小角散乱の測定を行った。図 1 (a), (b) は無磁場中に於ける散乱強度の温度依存性を $Q\leq 0.05 \text{ \AA}^{-1}$,

$Q \geq 0.05 \text{ \AA}^{-1}$ の領域についてそれぞれ示したものである。図 1 (a) の Q 領域では散乱強度の温度依存性は転移点の近傍に臨界散乱に起因すると思われるピークを持つような結果を与える。一方、図 1 (b) の Q 領域では T_g 近傍に見られたピークは消失し、およそ 200 K 以下で低温に向かって単調に増大するような散乱強度の振舞いが見られる。この各 Q 領域に於ける結果はそれぞれ先に述べた $x=0.3$ の試料に関する Child と Motoya らの結果、そして Cable らの結果と定性的に同じ振舞いを与えるものであった。この結果、先の予想が正しいものであることを確認することができた。さて、無磁場中に於ける小さい Q 領域での散乱は Ornstein-Zernike 則 (Lorentz 型) : $A\kappa_1^2/(\kappa_1^2+Q^2)$ に従うような Q 依存性を与えた。スピン揺動を特徴付ける 2 つのパラメーター、すなわち、振幅 A 及び相関距離の逆数 κ_1 はリエントラント転移点 T_g 近傍で T_g に向かって A が発散し、 κ_1 は分解能程度の非常に小さい値を持つような鋭い温度変化を与えた。したがってリエントラント転移が協力現象による磁気相転移であることが確認された。ただし、 T_g 以下では κ_1 は T_g に於ける極小値から徐々に増大し、最低温 (14 K) に於いてもおよそ 100 \AA 程度の相関距離に相当するようなスピンの熱揺らぎが依然として存在することが特徴的であった。この振舞いについては過去に Motoya らも $x=0.3$ の試料に対して同じ主張をしている。

また、およそ 200 K 以下で散乱関数を眺めてみると、Lorentz 型の依存性と Q の大きな領域に於ける Q^{-4} 型の Porod 則に従う依存性がクロス・オーバーする中間の Q 領域に有限の範囲に渡って Q^{-3} 型の依存性が現れることが確認されたが、このような power-law の変化を与える散乱曲線の振舞いはフラクタル構造から得られる散乱曲線と非常に似通ったものがある (Sinha, 1989)。フラクタル理論の与える構造の可能性がどれ位のものであるか詳細な研究は今後の課題である。

さて、この研究の意義は Q の大きな領域での散乱実験から次のような新しい情報が得られたことである。すなわち、 $x=0.285$ の試料に関する無磁場中及び磁場中での測定により、およそ 200 K ($> T_g$) から低温に向かってただ単調に増大するスピン揺動成分がはっきりと見えたことであり (図 1 (b))、また、同じ散乱強度の温度依存性は Cable らの $x=0.3$ の試料でも見られていたが、その起源をほぼ明らかにできたことである。これらは何度も主張するように Q の広い範囲を連続的に見ることによって、 Q の小さな領域との対比がはっきりとできたからである。つまり、無磁場中に於ける散乱曲線の Q 依存性の変化を Porod 則などに従って解析することにより $14 \sim 28 \text{ \AA}$ 程度の強磁性相関を持つ磁氣的クラスターがおよそ 200 K 以下で存在し、このサイズはほとんど温度変化しないことがまず明らかとなった。また、図 2 は 15 K に於ける散乱強度の磁場変化を表したものであるが、磁場の印加に伴って散乱強度が急に減衰し、有限の Q の位置にピークを持つような散乱曲線が得られることが解る。本研究ではこの散乱曲線を説明する平均的な描像をまず求めるために、均質な球状クラスター・モデルを考案した。その結果、このクラスター・サイズは 15 K、5 kOe で 34 \AA となり、無磁場中で得られた短距離相関距離 $14 \sim 28 \text{ \AA}$ と密接な関係があることが示唆された。また、同時にこの 5 kOe の最高磁場中でも

磁場方向に揃わないクラスター・スピンは低温でお互いランダムな配向を持つことが明らかとなった。ここで34 Åという値は特定磁場下でのサイズであり、さらに磁場の値を増大させた場合に変化が現れることも予想されたが、磁化測定によれば15 K, 5 kOe という状態は系のスピンのおよそ90 %程度が飽和した状態であるので、この変化は少ないと思われた。また、散乱曲線がQの値の大きな領域で全く磁場変化しないことはクラスターの形状因子が変化しないことに対応するので、これらのことから無磁場中及び磁場中で観測しているクラスターは同じものである可能性が大きいと考えられた。そして、低温に向かって散乱強度が増大する振舞いはこのクラスター・スピンがランダムに凍結を始めると考えれば旨く説明することができる。すなわち、Qの異なる領域に於けるスピン揺動の振舞いを全体的に眺め、 $x=0.285$ の試料のリエントラント転移を特徴付けると以下ようになる。まず、高温から温度を下げるにつれておよそ200 K付近で、系は14~30 Å程度の強磁性相関を持った領域に分割される。しかし、強磁性状態ではこれらのクラスター・スピンはお互い同位相で揺らいでいると考えられる。さらに温度を下げるにつれて凍結により徐々に位相がずれ始め T_g で協力的にクラスター・スピンの長距離秩序がなくなりスピングラス状態へ移行すると説明される。

Al 原子の濃度 x を増加させた場合、安定的な振舞いは $x=0.285$ の試料と同じであったが、特徴的な変化は散乱強度の減衰として現れた。さらに $x=0.324$ の試料では散乱に Q 依存性がほとんど見られなくなり、 x の値の増大とともに相関距離が次第に短くなることが示された。これらの結果は磁性を担う Fe 原子の割合が減少するにつれて、強磁性相関が広範囲に及び難しくなったことに起因すると思われる。

また、透過中性子偏局率解析の実験を $x=0.285, 0.318$ の試料に対して行った。その結果、低温での ZFC 過程に注目してみると、セミマクロなスケールで既に磁化は小さくなっており、自発磁化は存在しないという描像が得られた。この結果は中性子小角散乱で得られた描像と旨い対応を示すものであった。

このように本研究で得られた描像は平均場理論の予言とは異なるものであったが、スピン揺動が14~30 Å程度の磁氣的クラスターの存在に支配されているということがリエントラントスピングラスの本質であるのか、または、 $Fe_{1-x}Al_x$ 合金に特有な性質であるのかを決定することはスピングラス理論への重要な寄与と考えられる。つまり、合金に不可避の構造揺らぎ(FeとAlとの短距離秩序)と14~30 Å程度のスピン・クラスターとの相関をここで問題としている。この点を解決することは今後に残された重要な課題であると考えられる。

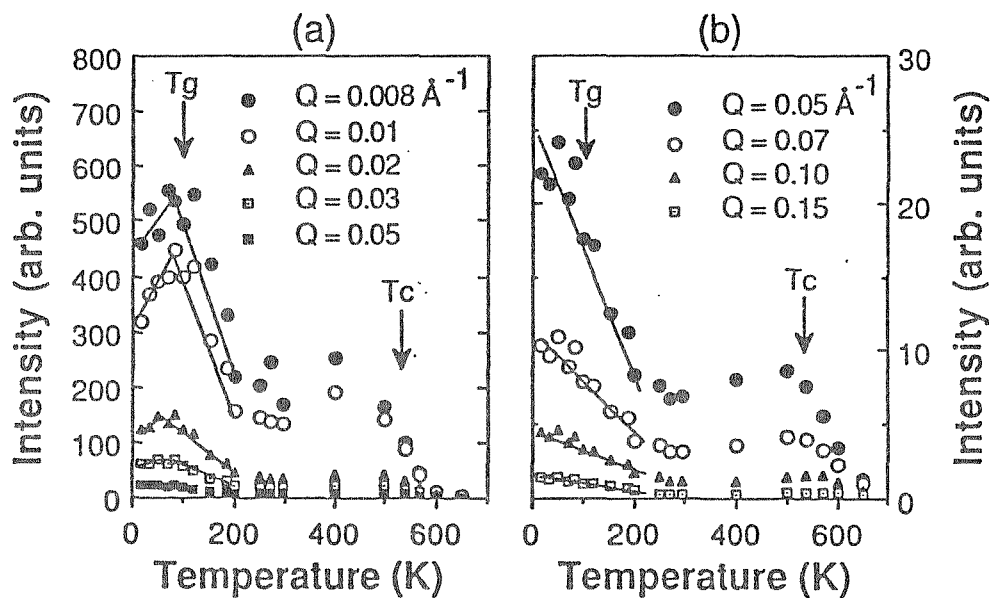


図1 $\text{Fe}_{0.715}\text{Al}_{0.285}$ に関する散乱強度の温度依存性
(a) $Q \leq 0.05 \text{ \AA}^{-1}$, (b) $Q \geq 0.05 \text{ \AA}^{-1}$

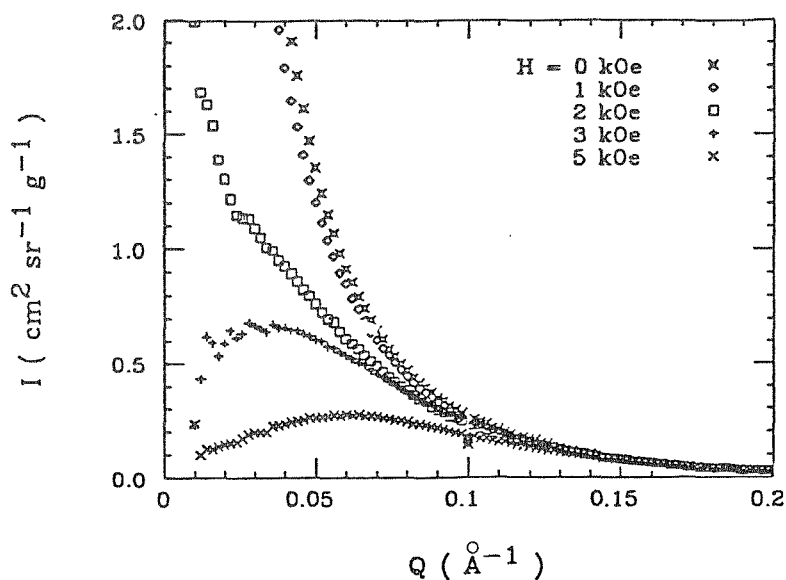


図2 $\text{Fe}_{0.715}\text{Al}_{0.285}$ に関する散乱強度の磁場依存性 (15 K)

論文審査の結果の要旨

常磁性状態にあったスピンの低温でランダムな方向を保ったまま凍結するものをスピングラスという。また、温度を下げていくと一たん強磁性などの長距離秩序が出現し、さらに低温でスピングラス的になるものをリエントラントスピングラスという。しかし、この現象は実験的にも理論的にもまだ完全に理解されているとは言い難い。本論文は、パルス冷中性子小角散乱の実験を主な手段として、FeAl 合金のリエントラントスピングラス状態のスピンの相関を調べたものである。

スピンの相関を調べるには中性子小角散乱が有力な手段であり、とくにパルス冷中性子を用いた実験は広い範囲の波数領域にわたるデータを同時にとることができるという長所をもっている。本論文の著者は高エネルギー物理学研究所にある実験装置に多くの改良を加え、本研究だけでなく多くの関連した研究を進める上に重要な貢献をした。

リエントラントスピングラスの状態を示すものには多くの物質があるが、著者がとくに FeAl 合金に着目したのは、リエントラントスピングラス状態を示す温度範囲が広いなどの理由によっている。FeAl のスピングラスは Al が 27~50 at% の組成範囲に存在するが、ここではとくに 28.5 at% のものについて詳細な実験を行った。この試料のリエントラントスピングラス転移温度 (T_g) は約 100 K である。

この実験では波数 0.008 \AA^{-1} から 0.2 \AA^{-1} の範囲の中性子散乱強度が同時に得られ、15 K から 800 K の温度範囲の実験が行われた。一定の波数の散乱強度を温度に対してとると、小さい波数では T_g でピークをもつが、大きい波数では T_g 以下でも単調に増大する。このような結果はそれぞれの波数領域で従来から得られていたものであるが、広い波数領域の同時測定において確認されたことは大きい意義をもっている。

大きい波数領域の散乱強度が低温で単調増大するのは、13~27 Å 程度の強磁性相関をもつクラスタースピンの次第に凍結していくためであると考察されている。本研究ではさらに試料を磁場中においたときの中性子小角散乱の実験を行い、たとえば 15 K で 5 kOe の磁場をかけると、波数 0.06 \AA^{-1} の付近に散乱のブロードなピークが現れることをみいだした。これも強磁性相関をもつクラスタースピンの凍結という考えで説明されている。

以上のような考えでリエントラントスピングラス転移を捉えることは興味深いものである。また、困難な実験を精力的に遂行した点も評価すべきであり、自立して研究活動を行うに必要な高度の研究能力と学識を有していると判断される。よって、鈴木淳市提出の論文は理学博士の学位論文として合格と認める。